

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

EUROPEAN PATENT OFFICE

PUBLICATION NUMBER : 08106914
PUBLICATION DATE : 23-04-96

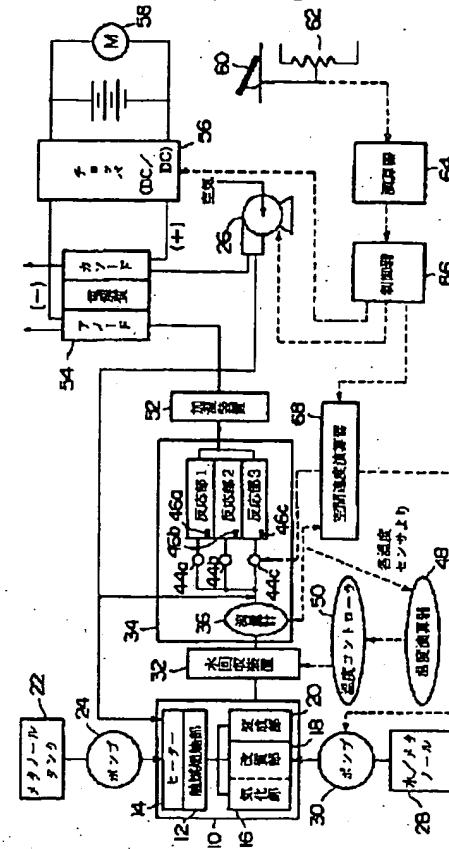
APPLICATION DATE : 30-09-94
APPLICATION NUMBER : 06259763

APPLICANT : AQUEOUS RES:KK;

INVENTOR : SHIRAISHI KOICHI;

INT.CL. : H01M 8/04 H01M 8/06 H01M 8/10

TITLE : FUEL CELL POWER GENERATING SYSTEM



ABSTRACT : PURPOSE: To reduce the concentration of carbon monoxide in a hydrogen-rich fuel gas supplied to a fuel cell to 10ppm or less.

CONSTITUTION: A reformed gas from a fuel reformer 14 is introduced into a carbon monoxide removing unit 34 through a water recovery unit 32, humidified with a humidifying unit 52, and supplied to a hydrogen electrode of a fuel cell 54 which outputs a driving power to a motor 58. A controller 66 controls output of the fuel cell based on a driving load instruction of the motor 58 corresponding to the actuating amount of a accel 60. Reaction parts of the unit 34 are divided into 38a-38c, switching valves 44a-44c are installed in the inlets of the reaction parts, and reformed gas flow rate introduced in the unit 34 is measured with a flow meter 36. A space velocity computing element 68 decides a reaction volume necessary for introducing the reformed gas in a flow rate of 1000-2000hr⁻¹ based on a fuel cell output value set by a controller 66 and the reformed gas flow rate measured with the flow meter 36, and controls so as to open only the switching valves 44a-44c.

COPYRIGHT: (C) JPO

特開平8-106914

(43)公開日 平成8年(1996)4月23日

(51) Int. C1.	識別記号	序内整理番号	F I	技術表示箇所
H 01 M	8/04	N		
	8/06	A		
	8/10	9444-4 K		

審査請求 未請求 請求項の数3 F D (全8頁)

(21)出願番号 特願平6-259763

(71)出願人 000100768
アイシン・エイ・ダブリュ株式会社

(22)出願日 平成6年(1994)9月30日

愛知県安城市藤井町高根10番地

(71)出願人 591261509

株式会社エクオス・リサーチ
東京都千代田区外神田2丁目19番12号

(72)発明者 佐藤 充

愛知県安城市藤井町高根10番地 アイシン
・エイ・ダブリュ株式会社内

(72)発明者 白石 剛一

東京都千代田区外神田2丁目19番12号 株
式会社エクオス・リサーチ内

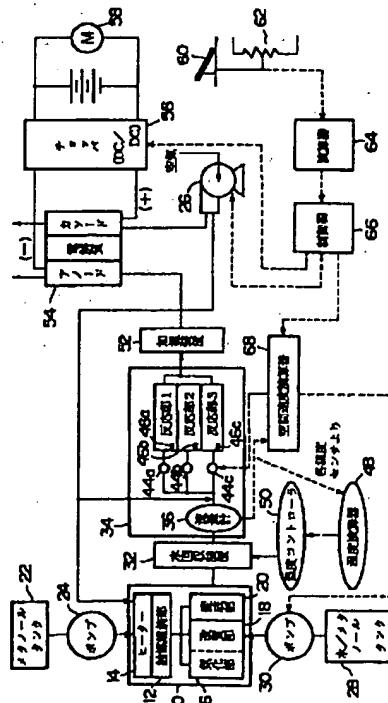
(74)代理人 弁理士 ▲桑▼原 史生

(54)【発明の名称】燃料電池発電装置

(57)【要約】 (修正有)

【目的】 燃料電池に供給される水素リッチな燃料ガス中の一酸化炭素濃度を10 ppm以下に低減させる。

【構成】 燃料改質装置10を出た改質ガスは水回収装置32を経て一酸化炭素除去装置34に導入され、加湿装置52で加湿されて後、モータ58に駆動電力を输出する燃料電池54の水素極に供給され、アクセルペダル60の踏み込み量に応じたモータの駆動負荷指令を受けて、制御器66は燃料電池の出力値を制御し、装置34の反応部は38a～38cに分割され、各々の反応部の入口には開閉バルブ44a～44cが設けられ、装置34に導入される改質ガス流量は流量計36により測定され、空間速度演算器68は制御器66により設定された燃料電池出力値と流量計36によって測定された改質ガス流量とに基づいて、改質ガスを1000～2000 hr⁻¹で装置34の反応部に導入するために必要な反応容積を決定し、これに基づいて開閉バルブ44a～44cのみを開くように開閉制御する、燃料電池発電装置。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 改質原料を貯蔵する改質原料貯蔵手段と、前記改質原料貯蔵手段から供給される改質原料を水素リッチな改質ガスに改質反応させる改質手段と、前記改質手段により生成された改質ガス中に含まれる一酸化炭素濃度を酸化触媒の作用により酸化除去して低減させる一酸化炭素除去手段と、前記一酸化炭素除去手段により一酸化炭素濃度が低減された改質ガスと酸化剤ガスとが供給されて電池反応を起こすことによりモータの駆動用電力を出力する燃料電池と、前記モータの駆動負荷を指令する駆動負荷指令手段と、前記駆動負荷指令手段より与えられる駆動負荷指令に応じて前記燃料電池の出力値を指令する燃料電池出力制御手段と、前記燃料電池出力制御手段によって指令された燃料電池出力値に基づいて前記一酸化炭素除去手段に導入される改質ガスに所定の空間速度が与えられるよう前記一酸化炭素除去手段における反応容積を増減させる空間速度演算手段と、をしてなることを特徴とする燃料電池発電装置。

【請求項2】 前記一酸化炭素除去手段は、前記酸化触媒が担持または充填される触媒層を各々有する複数の反応部が仕切板で分割されてなる構造体であることを特徴とする請求項1の燃料電池発電装置。

【請求項3】 前記改質手段から前記一酸化炭素除去手段への改質ガス導入管は、前記複数の反応部に分岐する複数の改質ガス分流管と、前記複数の改質ガス分流管の各々に設けられる分流管閉閉バルブと、前記改質ガス分流管より上流側に設けられて改質ガスの流量を測定する改質ガス流量測定手段とを有しており、前記空間速度演算手段は、前記燃料電池出力制御手段によって指令された燃料電池出力値と前記改質ガス流量測定手段によって測定された改質ガス流量とに基づいて前記分流管閉閉バルブを開閉制御することを特徴とする請求項2の燃料電池発電装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は燃料電池発電装置に関し、特に電気自動車に搭載するに好適な固体高分子電解質型燃料電池発電装置に関する。

【0002】

【従来の技術】 近年、地球環境保護の観点から、有害ガスの発生源となるガソリンエンジン等を駆動源とせず、クリーンな電力によって車両を駆動させる電気自動車が注目されている。

【0003】 電気自動車の駆動電源への電力供給源としては、水素ガスおよび酸素ガスを燃料とする燃料電池が一般に用いられているが、燃料電池のみを用いた電源装置では航続距離が不十分であるため、出力容量は小さいがエネルギー容量が大きい燃料電池と、エネルギー容量は小さいが出力容量が大きい二次電池とを組み合わせたハイブリッド電源装置が開発されるに至っている。

【0004】 ハイブリッド電源装置を用いた電気自動車用発電装置は特開平3-276573号公報等に公知である。この従来技術においては、アクセルペダルの踏み込み量がポテンショメータを介して演算器に入力され、該演算器において、アクセルペダルの踏み込み量に応じた車両の負荷指令に基づいて燃料電池に供給する燃料ガス量が演算され、その演算結果に基づいて、制御器が燃料ガス量を制御するように構成されている。このようにして、駆動負荷の変化に対して燃料電池の燃料ガス供給量を切り替えることで、燃料電池の出力をたとえば3 kWの範囲内で変化させ、アクセルペダルの踏み込み量に対応した車両の駆動を実現している。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 上記従来技術では、燃料ガスとして水素ボンベからの水素ガスを用いているため、電源装置と共に水素ボンベを車両に搭載する必要があるが、この場合には車両重量が増大し、ボンベ交換に伴う保守管理が煩雑となる。一方、酸素ガスも酸化剤ガスとして使用しているため、車両内の爆発の危険性が大きい。

【0006】 電気自動車に搭載することを前提とした場合、燃料電池発電装置は、水素ボンベを使用せず、炭化水素系の液体燃料を原料として用い、これを燃料改質装置に導入して水蒸気改質反応により水素リッチな改質ガスを生成させ、この改質ガスを燃料電池の水素極に供給するように構成することが望ましい。また、燃料電池としては、小型かつエネルギー効率の優れた固体高分子電解質型燃料電池を用いることが最適である。

【0007】 ところが、固体高分子電解質型燃料電池の作動温度は100°C前後であり、このような低温域では電極触媒(Pt)が改質ガス中の一酸化炭素に被毒されて劣化し、燃料電池の性能を不安定にすると共に寿命を短くしてしまう。この問題を回避するためには、改質反応直後の改質ガス中には約1%含まれている一酸化炭素濃度を、水素極に供給する時点では100 ppm以下、好ましくは10 ppm以下にまで低減させる必要がある。

【0008】 従来は、改質反応後の改質ガスを変成触媒によりシフト反応($\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2 + \text{CO}_2$)させて一酸化炭素濃度を1000 ppm程度にまで低減させた後、更に一酸化炭素除去装置に導入して、選択酸化触媒($\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$)により酸化除去($\text{CO} + 1/2 \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2$)して一酸化炭素濃度を100 ppmあるいはそれ以下にまで低減させる2段階の処理が行われている。

【0009】 この選択酸化触媒は90~140°Cを活性温度域とするため、触媒を担持した一酸化炭素除去装置の反応部の温度を該温度域に保持する必要があるが、本発明者による実験の結果、温度制御と共に、酸化除去反応に適した空間速度SV(1000~2000 hr⁻¹)

で改質ガスを反応部に導入することが不可欠であることを知った。すなわち、この空間速度を上回ると、改質ガス流量が過多となるため、同時に含有される一酸化炭素濃度も過多となり、未反応のまま改質ガス中に残存する一酸化炭素量が増加してしまう。一方、上記空間速度を下回るときは、改質ガス中の主成分である水素と改質反応段階での副生物である二酸化炭素とが反応する副反応 ($H_2 + CO_2 \rightarrow CO + H_2O$) が前記酸化除去反応に平行して進行するため、一酸化炭素濃度を目的値にまで低減させることができない。

【0010】前記した従来技術では、車両の駆動電力において負荷変動が生じた場合、燃料ガスの供給量を制御するだけであるため、一酸化炭素除去装置においては上記空間速度の所定範囲を外れてしまい、改質ガス中の一酸化炭素濃度を十分に低減させることができない。

【0011】

【課題を解決するための手段】そこで本発明は上記した従来技術の問題点を解消し、改質装置を燃料ガス生成手段とする燃料電池発電装置を車両に搭載する場合において、駆動電力に負荷変動が生じた場合であっても、一酸化炭素除去装置に導入される改質ガスに常に最適な空間速度条件を与え、一酸化炭素濃度を確実に 10 ppm 以下にまで低減させた状態で燃料電池の水素極に供給することを目的とする。

【0012】かかる目的を達成するために創案された本発明は、改質原料を貯蔵する改質原料貯蔵手段と、改質原料貯蔵手段から供給される改質原料を水素リッチな改質ガスに改質反応させる改質手段と、改質手段により生成された改質ガス中に含まれる一酸化炭素濃度を酸化触媒の作用により酸化除去して低減させる一酸化炭素除去手段と、一酸化炭素除去手段により一酸化炭素濃度が低減された改質ガスと酸化剤ガスとが供給されて電池反応を起こすことによりモータの駆動用電力を出力する燃料電池と、モータの駆動負荷を指令する駆動負荷指令手段と、駆動負荷指令手段より与えられる駆動負荷指令に応じて前記燃料電池の出力値を指令する燃料電池出力制御手段と、燃料電池出力制御手段によって指令された燃料電池出力値に基づいて一酸化炭素除去手段に導入される改質ガスに所定の空間速度が与えられるよう一酸化炭素除去手段における反応容積を増減させる空間速度演算手段と、を有してなることを特徴とする燃料電池発電装置である。

【0013】一酸化炭素除去手段は、前記酸化触媒が担持または充填される触媒層を各々有する複数の反応部が仕切板で分割されてなる構造体とすることができます。

【0014】この場合において、改質手段から一酸化炭素除去手段への改質ガス導入管は、複数の反応部に分岐する複数の改質ガス分流管と、複数の改質ガス分流管の各々に設けられる分流管開閉バルブと、改質ガス分流管より上流側に設けられて改質ガスの流量を測定する改質

ガス流量測定手段とを有するものとして構成し、かつ、空間速度演算手段は、燃料電池出力制御手段によって指令された燃料電池出力値と改質ガス流量測定手段によつて測定された改質ガス流量に基づいて分流管開閉バルブを開閉制御するものとして構成することができる。

【0015】また、空間速度演算手段は、一酸化炭素除去手段に導入される改質ガスに $1000 \sim 2000 \text{ h}^{-1}$ の空間速度を与えるよう、一酸化炭素除去手段における反応容積を増減させることができない。

10 【0016】

【作用】モータの駆動電力を供給する燃料電池の出力変化に対応して、一酸化炭素除去手段における反応容積が増減制御され、改質ガスが常に所定の空間速度で一酸化炭素除去手段に導入されるため、一酸化炭素除去手段に用いられる酸化触媒が最大限に活性化される。これにより改質ガス中の含有一酸化炭素濃度が 10 ppm 以下にまで低減されて燃料電池に供給されるため、電極を劣化させることができなく、安定した電池性能が長期間にわたって発揮される。

20 【0017】

【実施例】図1は本発明の一実施例による電気自動車用固体高分子電解質型燃料電池のシステム構成を示している。

【0018】燃料改質装置10の燃焼部12には、液体メタノールがタンク22からポンプ24により導入されると共に、空気プロア26からの空気が導入され、該燃焼部に充填される燃焼触媒上で液体メタノールを燃焼することによって熱源ガスを生成する。本実施例では燃焼触媒による触媒燃焼部12とされているため、該燃焼触媒を活性温度まで加熱するためのヒータ14が設けられている。なお、熱源は上記に特定されるものではなく、たとえば、空気を燃焼助剤として水素ガスや液体メタノールをバーナーで燃焼させて熱源ガスを生成してもよい。熱源ガスは、後述する気化部16、改質部18および変成部20における気化反応、改質反応およびシフト反応のための熱源として用いられる。

30 【0019】改質原料であるメタノールおよび水の混合液体燃料（混合比 $1 : 1 \sim 1 : 4$ ）はタンク28に収容されており、ポンプ30により燃料改質装置10の気化部16に導入され、該気化部16にて順次気化された改質燃料ガスが隣接する改質部18の改質触媒上に導入されて、改質反応 ($CH_3OH(g) + H_2O(g) \rightarrow 3H_2 + CO_2$) により水素リッチな改質ガスが生成される。改質部18は改質触媒の担持体であり、たとえばCu/Znからなる改質触媒が含浸、溶射、電着、スパッタ、塗布等により改質部構造体に担持されている。改質部構造体は前記熱源ガスによって改質触媒の活性温度範囲である $250 \sim 300^\circ\text{C}$ に保持される。改質触媒の下で改質反応を受けて生成される改質ガスは水素リッチなものではあるが、余剰水蒸気、二酸化炭素および微量

40 45 50

(1%程度)の一酸化炭素が含まれている。

【0020】改質反応により生成された改質ガスは、改質部38から隣接する変成部20に導入され、変成触媒の下でのシフト反応($\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_2 + \text{CO}_2$)により一酸化炭素が除去され、改質ガス中の一酸化炭素濃度が1000 ppm程度にまで低減される。シフト反応の活性温度範囲は150~200°Cであり、変成部での加熱源として前記熱源ガスが利用される。

【0021】変成部20におけるシフト反応を経た改質ガスは、水回収装置32に導入される。水回収装置32は、改質ガスを通過せしめる水回収層と、室温以下の冷水である冷却水を通過せしめる冷却層とが交互に積層された積層体を有し、該積層体の底部には冷却水タンクが設けられている。水回収層には必要に応じてシリカゲル等の吸水剤粒子が充填されており、改質ガスが水回収層を通過する間に改質ガス中に含まれる余剰水分を凝縮除去するように構成されている。同時に、改質ガスは水回収装置32内を通過する間に冷却水によって冷却される。

【0022】水回収装置32を通過した改質ガスは、空気プロア26からの空気と共に、一酸化炭素除去装置34に導入されて、該装置内に担持される選択酸化触媒($\text{Pt}/\text{Al}_2\text{O}_3$)による酸化反応($\text{CO} + 1/2 \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2$)により、改質ガス中の一酸化炭素が二酸化炭素に酸化除去される。

【0023】一酸化炭素除去装置34には、改質ガスの導入流量を測定する改質ガス流量計36が設けられる。上記選択酸化触媒による酸化反応が行われる反応部38は、図2に示されるように、ガス不透過性かつ熱伝導性の良好な材料(たとえばステンレス)で形成された仕切板40a、40bによって複数の反応部38a~38cに分割されている。各反応部においては、改質ガスを通過せしめる選択酸化触媒充填部41に隣接して、冷却水を通過せしめる冷却層42が設けられ、前記選択酸化触媒をその活性温度域である90~140°Cに保持する。冷却水は、前記水回収装置32の冷却層と一酸化炭素除去装置34の反応部冷却層42とに循環させるようにしてもよい。また、触媒担持量を増大させるために、図3に示されるように触媒充填部41'を断面L字形状に形成し、各触媒充填部の切り欠き部分を冷却層42'としてもよい。

【0024】なお、各反応部38a~38cに導入された改質ガスの温度を常時測定する温度センサー46a~46cが設けられ、その測定信号は温度演算器48に送られる。温度演算器48は、各温度センサーにより測定された改質ガス温度の平均温度値を算出してその演算結果を温度コントローラ50に送る。このようにして、改質ガスの平均温度がたとえば100°C以上に上昇したことが検知されたとき、温度コントローラ50は、水回収装置32における冷却効果を向上させるよう制御するこ

とにより、一酸化炭素除去装置34の反応部38における選択酸化触媒を常に活性温度域に保持することができる。

【0025】各反応部38a~38cの上流側には各々開閉バルブ44a~44cが設けられており、流量計36を通過した後の改質ガスは、後述するようにして制御された結果開放されたバルブを持つ一または複数の反応部に分岐して導入されて、選択酸化触媒による一酸化炭素の酸化除去が行われる。

【0026】このようにして変成部20におけるシフト反応および一酸化炭素除去装置34における酸化除去反応により二段階の一酸化炭素除去処理を受けて一酸化炭素濃度が100 ppm以下、さらには10 ppm以下にまで低減された改質ガスは、恒温水槽およびヒーターによりなる加湿装置52を介して、固体高分子電解質型燃料電池54の水素極(-)に供給される。加湿装置52において改質ガスが冷却されると共に加湿されるので、燃料電池が50~100°Cの最適作動温度域に保持され、かつ、電解質膜に水分補給がなされてその潤滑状態が維持される。

【0027】固体高分子電解質型燃料電池54は、周知のように、水素極(-)に供給される改質ガスと空気プロア26から酸素極(+)に供給される酸化剤ガスとの空気とを、固体高分子電解質膜の作用の下で発電反応させることにより電力を得るものであり、その出力はショッパ56を介して車両駆動用のモータ58に給電される。

【0028】アクセルペダル60の踏み込み量がポテンショメータ62により電気信号に変換されて演算器64に入力され、該演算器において、アクセルペダルの踏み込み量に応じた車両の負荷指令に基づいて、燃料電池54の出力値が演算される。制御器66は、この演算結果の燃料電池出力値に基づいて、燃料電池54の水素極への改質ガス供給および酸素極への空気供給を制御すると共に、ショッパ56の出力を制御する。ここで、酸素極への空気供給についてはその空気プロア26からの供給量が制御されるが、水素極への改質ガス供給については、その供給量が制御されると共に、一酸化炭素除去装置34の反応部38内の選択酸化触媒に対して常に最適な空間速度で改質ガスが導入されるように制御される。

【0029】以下、改質ガス供給制御について説明すると、演算器64で演算された車両の負荷指令に基づいた燃料電池54の出力値と、流量計36で測定された現時点での改質ガス流量とが、空間速度演算器68に入力され、これら入力値に基づいて、一酸化炭素除去装置34における選択酸化反応に適した空間速度SV(1000~2000 hr⁻¹)が得られるような反応容積が演算される。

【0030】たとえば、全体容積が約4000 cm³である反応部38が2枚の仕切板40a、40bにより各

々約 1330 cm^3 の容積を有する反応部 $38a \sim 38c$ に3分割されている場合において、最適空間速度 $S V = 1500\text{ h r}^{-1}$ として、燃料電池の出力値 P (kW)と改質ガス流量 Q ($\text{m}^3/\text{h r}$)とから反応容積 V (cm^3)を演算する場合、次のようにして反応容積を演算する。

【0031】

P (kW)	Q ($\text{m}^3/\text{h r}$)	V (cm^3)
1	2	1330
2	4	2660
3	6	4000

すなわち、燃料電池出力 P が 1 kW に設定された場合、改質ガス流量 Q の実測値が $2\text{ m}^3/\text{h r}$ であれば、反応容積は 1330 cm^3 が適正であると演算されるので、单一の反応部 ($38a$) のみに改質ガスを導入すればよいことになる。燃料電池出力が 2 kW に設定された場合には2つの反応部 ($38a$ 、 $38b$) に、 3 kW に設定された場合には3つの反応部 ($38a \sim 38c$) のすべてに、それぞれ改質ガスを導入する。

【0032】このようにして反応容積を演算した後、該演算結果の反応容積が得られるように、各反応部に設けられた開閉バルブ $44a \sim 44c$ を開閉制御する。

【0033】また、空間速度演算器 68 は、制御器 66 により設定された燃料電池出力 P を得るために改質ガス流量 Q を増減させる必要がある場合には、ポンプ 30 による燃料供給量を制御する。このようにして燃料供給量が増減制御された場合には、その制御後の改質ガス流量 Q が流量計 36 で測定されて空間速度演算器 68 に入力され、上記した要領にて最適な反応容積が演算され、各開閉バルブの開閉制御がなされる。

【0034】

【発明の効果】本発明によれば、電気自動車の駆動負荷の変化に伴う燃料電池の出力変化に対応して、一酸化炭素除去装置に導入される改質ガスの空間速度が一定範囲内に制御される。これにより、一酸化炭素除去装置に担持される選択酸化触媒の作用による一酸化炭素の酸化除去反応が効率的に行われ、常に所定レベル (たとえば 1.0 ppm) 以下に含有一酸化炭素濃度を低減させた状態で改質ガスを燃料電池に供給することが可能となり、燃料電池の電極触媒の劣化を防止し、燃料電池に安定した性能を与えると共に長寿命化を達成することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施例による電気自動車用固体高分子電解質型燃料電池の概略システム構成図である。

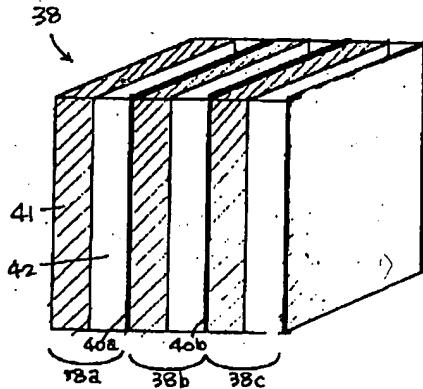
【図2】図1における一酸化炭素除去装置の反応部の構成を概略的に示す斜視図である。

【図3】図1における一酸化炭素除去装置の反応部の構成についての変形例を概略的に示す斜視図である。

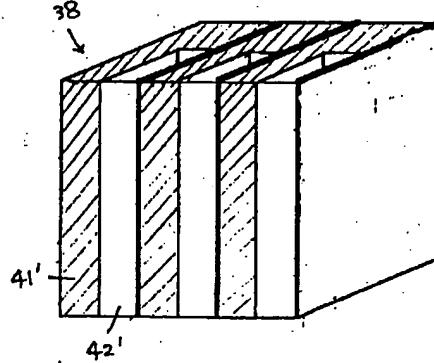
【符号の説明】

- 10 燃料改質装置
- 18 改質部
- 20 变成部
- 28 改質原料タンク
- 30 ポンプ
- 34 一酸化炭素除去装置
- 36 改質ガス流量計
- 44a ~ 44c 開閉バルブ
- 54 燃料電池
- 60 アクセルペダル
- 64 演算器
- 66 制御器
- 68 空間速度演算器

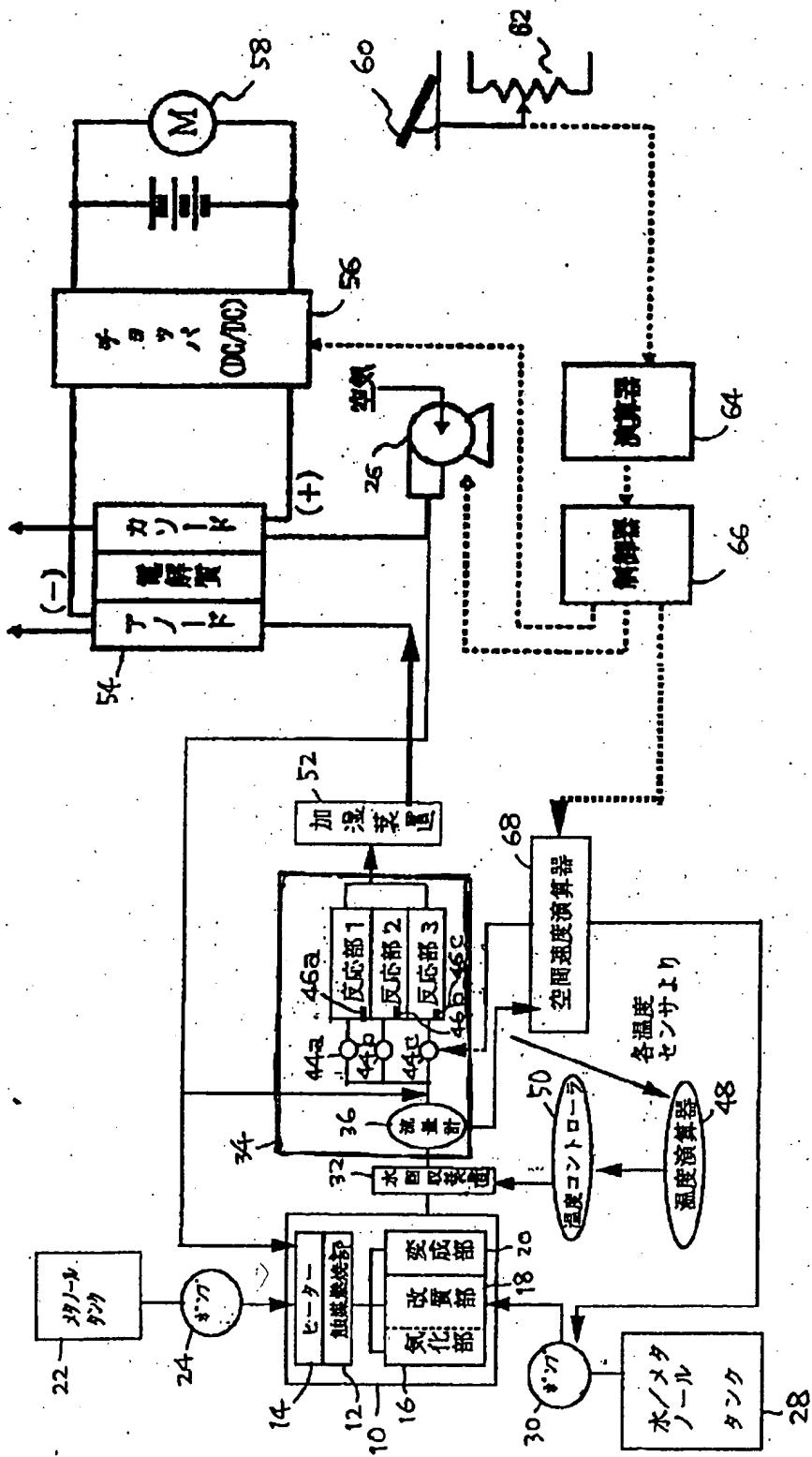
【図2】



【図3】



【図1】



【手続補正書】

【提出日】平成6年11月15日

【手続補正2】

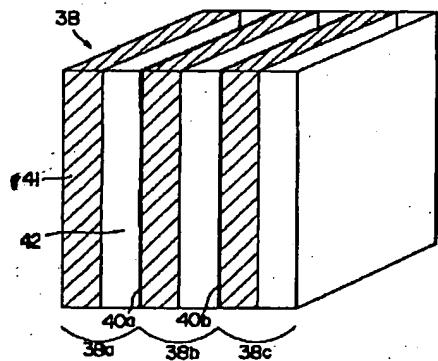
【補正対象書類名】図面

【補正対象項目名】全図

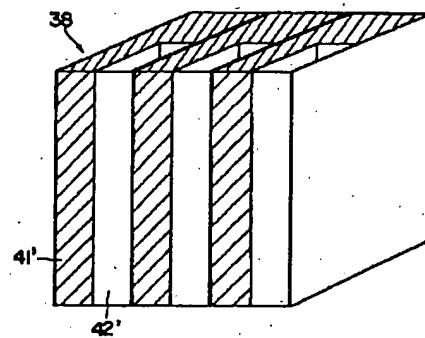
【補正方法】変更

【補正内容】

【図2】



【図3】



【図1】

